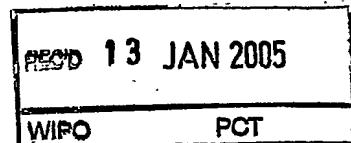


日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

17.11.2004



別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日
Date of Application: 2003年11月19日

出願番号
Application Number: 特願2003-389059
[ST. 10/C]: [JP2003-389059]

出願人
Applicant(s): 日東电工株式会社

BEST AVAILABLE COPY

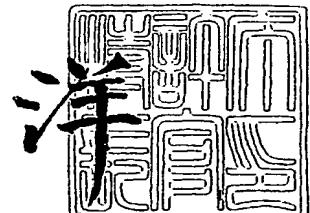
CERTIFIED COPY OF
PRIORITY DOCUMENT

PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

2004年12月22日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

小川



【書類名】 特許願
【整理番号】 P03538ND
【あて先】 特許庁長官殿
【国際特許分類】 H01M 08/00
【発明者】
 【住所又は居所】 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東電工株式会社内
 【氏名】 矢野 雅也
【発明者】
 【住所又は居所】 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東電工株式会社内
 【氏名】 杉本 正和
【発明者】
 【住所又は居所】 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東電工株式会社内
 【氏名】 荒木 俊雄
【特許出願人】
 【識別番号】 000003964
 【住所又は居所】 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号
 【氏名又は名称】 日東電工株式会社
【代理人】
 【識別番号】 100092266
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 鈴木 崇生
 【電話番号】 06-6838-0505
【選任した代理人】
 【識別番号】 100104422
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 梶崎 弘一
 【電話番号】 06-6838-0505
【選任した代理人】
 【識別番号】 100105717
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 尾崎 雄三
 【電話番号】 06-6838-0505
【選任した代理人】
 【識別番号】 100104101
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 谷口 俊彦
 【電話番号】 06-6838-0505
【手数料の表示】
 【予納台帳番号】 074403
 【納付金額】 21,000円
【提出物件の目録】
 【物件名】 特許請求の範囲 1
 【物件名】 明細書 1
 【物件名】 図面 1
 【物件名】 要約書 1
 【包括委任状番号】 9903185

【書類名】特許請求の範囲

【請求項 1】

板状の固体高分子電解質と、その固体高分子電解質の両側に配置された一対の電極板とを備える燃料電池において、

前記電極板の両側に配置され、流路溝とその流路溝に連通する注入口及び排出口が設けられた一対の金属板を備え、その金属板の周縁が絶縁材料を介在させつつカシメにより封止されていることを特徴とする燃料電池。

【請求項 2】

前記金属板は、プレス加工による金属板の変形により前記流路溝が形成されている請求項 1 記載の燃料電池。

【請求項 3】

前記固体高分子電解質、一対の電極板、及び一対の金属板で単位セルを構成し、この単位セルを複数積層してある請求項 1 又は 2 に記載の燃料電池。

【書類名】明細書

【発明の名称】燃料電池

【技術分野】

【0001】

本発明は、固体高分子電解質を用いた燃料電池に関し、特に厚みを薄くすることのできる高分子型燃料電池に関する。

【背景技術】

【0002】

ポリマー電解質のような固体高分子電解質を使用した高分子型燃料電池は、高いエネルギー変換効率を持ち、薄型小型・軽量であることから、家庭用コージェネレーションシステムや自動車向けに開発が活発化している。かかる燃料電池の従来技術の構造として、図6に示すものが知られている（例えば、非特許文献1参照）。

【0003】

即ち、図6に示すように、固体高分子電解質膜100を挟んでアノード101とカソード102とを配設する。さらに、ガスケット103を介して一対のセパレータ104により挟持して単位セル105を構成する。各々のセパレータ104にはガス流路溝が形成されており、アノード101との接触により、還元ガス（例えば、水素ガス）の流路が形成され、カソード102との接触により、酸化ガス（例えば、酸素ガス）の流路が形成される。各々のガスは、単位セル105内の各流路を流通しながら、アノード101又はカソード102の内部に担持された触媒の作用により電極反応（電極における化学反応）に供され、電流の発生とイオン伝導が生じる。

【0004】

この単位セル105を多数個積層し、単位セル105どうしを電気的に直列に接続して燃料電池Nを構成し、電極106は、積層した両端の単位セル105から取り出すことができる。このような燃料電池Nは、クリーンかつ高効率という特徴から、種々の用途、特に、電気自動車用電源や家庭用分散型電源として注目されている。

【0005】

一方、近年のIT技術の活発化に伴い、携帯電話、ノートパソコン、デジカメなどモバイル機器が頻繁に使用される傾向があるが、これらの電源は、ほとんどリチウムイオン二次電池が用いられている。ところが、モバイル機器の高機能化に伴って消費電力がどんどん増大し、その電源用としてクリーンで高効率な燃料電池が注目されてきている。

【0006】

しかしながら、図6に示すような従来の構造では、構造に自由度が無いため、モバイル機器の電源として求められる薄型小型軽量化や形状の高自由度化に難があり、メンテナンス性が悪いという問題もあった。また、燃料電池セル内で酸化還元ガスを相互に混合させないように供給し、かつ、密閉化することが難しく、これらの条件を満たしながら、燃料電池セルの大きさや重量を低減化することは困難であった。つまり、従来、セル部品をボルト及びナットの締結部品で相互結合して、セル部品に一定の圧力を加えていたため、シール性を確保する上で、各部材の剛性を高める必要性があり、どうしても薄型化、小型化、軽量化、自由な形状設計が困難であった。

【非特許文献1】日経メカニカル別冊「燃料電池開発最前線」発行日2001年6月29日、発行所：日経BP社、第3章PEFC、3.1原理と特徴 p46

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0007】

そこで、本発明の目的は、単位セルごとに確実に封止を行うことができ、これによって薄型化が可能となり、メンテナンスも容易になり、しかも小型軽量かつ自由な形状設計が可能な燃料電池を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0008】

上記目的は、下記の如き本発明により達成できる。

【0009】

即ち、本発明の燃料電池は、板状の固体高分子電解質と、その固体高分子電解質の両側に配置された一対の電極板とを備える燃料電池において、前記電極板の両側に配置され、流路溝とその流路溝に連通する注入口及び排出口が設けられた一対の金属板を備え、その金属板の周縁が絶縁材料を介在させつつカシメにより封止されていることを特徴とする。

【0010】

本発明の燃料電池によると、電極板と流路溝が形成された金属板との接触により、ガスの注入口及び排出口に連通するガス流路を形成でき、各々の電極板で電極反応を生じさせることができ、金属板から電流を取り出すことができる。また、金属板の周縁が絶縁材料を介在させつつカシメにより封止されているため、両者の短絡を防止しながら、厚みをさほど増加させずに単位セルごとに確実に封止を行うことができる。これによってメンテナンスも容易になり、しかも図6に示す従来構造と比較してセル部材に剛性が要求されないため、各単位セルを大幅に薄型化することができる。更に、固体高分子電解質や金属板を使用するため、自由な平面形状や屈曲が可能となり、小型軽量かつ自由な形状設計が可能となる。

【0011】

上記において、前記金属板は、プレス加工による金属板の変形により前記流路溝が形成されていることが好ましい。上記の如き封止構造は金属板のカシメにより好適に形成でき、金属板への溝形成をプレス加工で行うことで、コスト的に有利に金属板を製造できるようになる。また、プレス加工で溝形成した金属板は厚みの増加を最小限にすることでき、単位セルごとに確実に封止を行うことと併せて、燃料電池のより薄型化が可能となる。

【0012】

また、前記固体高分子電解質、一対の電極板、及び一対の金属板で単位セルを構成し、この単位セルを複数積層してあることが好ましい。これによると各々の単位セルを薄型化できるため、全体として高出力の燃料電池を得ることができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0013】

以下、本発明の実施の形態について、図面を参照しながら説明する。図1は、本発明の燃料電池の単位セルの一例を示す組み立て斜視図であり、図2は、本発明の燃料電池の単位セルの一例を示す正面視断面図である。

【0014】

本発明の燃料電池は、図1～図2に示すように、板状の固体高分子電解質1と、その固体高分子電解質1の両側に配置された一対の電極板2，3とを備えるものである。

【0015】

固体高分子電解質1としては、従来の固体高分子膜型電池に用いられるものであれば何れでもよいが、化学的安定性及び導電性の点から、超強酸であるスルホン酸基を有するパーカーフルオロカーボン重合体からなる陽イオン交換膜が好適に用いられる。このような陽イオン交換膜としては、ナフィオン（登録商標）が好適に用いられる。

【0016】

その他、例えば、ポリテトラフルオロエチレン等のフッ素樹脂からなる多孔質膜に上記ナフィオンや他のイオン伝導性物質を含浸させたものや、ポリエチレンやポリプロピレン等のポリオレフィン樹脂からなる多孔質膜や不織布に上記ナフィオンや他のイオン伝導性物質を担持させたものでもよい。

【0017】

固体高分子電解質1の厚みは、薄くするほど全体の薄型化に有効であるが、イオン伝導機能、強度、ハンドリング性などを考慮すると、10～300μmが使用可能であるが、25～50μmが好ましい。

【0018】

電極板2，3は、ガス拡散層としての機能を發揮して、燃料ガスや、酸化ガス及び水蒸

気の供給・排出を行なうと同時に、集電の機能を発揮するものが使用できる。電極板2, 3としては、同一又は異なるものが使用でき、その基材には電極触媒作用を有する触媒を担持させることが好ましい。触媒は、固体高分子電解質1と接する内面2b, 3bに少なくとも担持させるのが好ましい。

【0019】

電極基材としては、例えば、カーボンペーパー、カーボン繊維不織布などの繊維質カーボン、導電性高分子繊維の集合体などの電導性多孔質材が使用できる。一般に、電極板2, 3は、このような電導性多孔質材にフッ素樹脂等の撥水性物質を添加して作製されるものであって、触媒を担持させる場合、白金微粒子などの触媒とフッ素樹脂等の撥水性物質とを混合し、これに溶媒を混合して、ペースト状或いはインク状とした後、これを固体高分子電解質膜と対向すべき電極基材の片面に塗布して形成される。

【0020】

一般に、電極板2, 3や固体高分子電解質1は、燃料電池に供給される還元ガスと酸化ガスに応じた設計がなされる。本発明では、酸化ガスとして酸素ガスや空気が用いられると共に、還元ガスとして水素ガスや用いられる。また、還元ガスの代わりに、メタノールやジメチルエーテル等を用いることもできる。

【0021】

例えば、水素ガスと空気を使用する場合、空気を供給する側の電極（空気極）では、酸素と水素イオンの反応が生じて水が生成するため、かかる電極反応に応じた設計をするのが好ましい。特に、低作動温度、高電流密度及び高ガス利用率の運転条件では、特に水が生成する空気極において水蒸気の凝縮による電極多孔体の閉塞（フラッディング）現象が起こりやすい。したがって、長期にわたって燃料電池の安定な特性を得るために、フラッディング現象が起こらないように電極の撥水性を確保することが有効である。

【0022】

触媒としては、白金、パラジウム、ルテニウム、ロジウム、銀、ニッケル、鉄、銅、コバルト及びモリブデンから選ばれる少なくとも1種の金属か、又はその酸化物が使用でき、これらの触媒をカーボンブラック等に予め担持させたものも使用できる。

【0023】

電極板2, 3の厚みは、薄くするほど全体の薄型化に有効であるが、電極反応、強度、ハンドリング性などを考慮すると、 $50 \sim 500 \mu\text{m}$ が好ましい。

【0024】

電極板2, 3と固体高分子電解質1とは、予め接着、融着等を行って積層一体化しておいてもよいが、単に積層配置されているだけでもよい。このような積層体は、薄膜電極組立（Membrane Electrode Assembly :MEA）として入手することもでき、これを使用してもよい。

【0025】

前記電極板2, 3の両側には、一対の金属板4, 5が配置され、金属板4, 5には流路溝9と、これに連通する注入口4c, 5c及び排出口4d, 5dが設けられている。金属板4, 5としては、電極反応に悪影響がないものであれば何れの金属も使用できる。但し、伸び、重量、弹性率、強度、耐腐食性、プレス加工性などの観点から、ステンレス板、ニッケルなどが好ましい。

【0026】

金属板4, 5に設けられる流路溝9は、電極板2, 3との接触により水素ガス等の流露が形成できるものであれば何れの平面形状や断面形状でもよい。但し、流路密度、積層時の積層密度、屈曲性などを考慮すると、金属板4, 5の一辺に平行な縦溝9aと垂直な横溝9bを主に形成するのが好ましい。本実施形態では、複数本（図示した例では3本）の縦溝9aが横溝9bに直列接続されるようにして、流路密度と流路長のバランスを取っている。

【0027】

なお、このような金属板4, 5の流路溝9の一部（例えば横溝9b）を電極板2, 3の

外面に形成してもよい。電極板2，3の外面に流路溝2a，3aを形成する方法としては、加熱プレスや切削などの機械的な方法でもよいが、微細加工を好適に行う上で、レーザ照射によって溝加工を行うことが好ましい。レーザ照射を行う観点からも、電極板2，3の基材としては、繊維質カーボンの集合体が好ましい。

【0028】

金属板4，5の流路溝9に連通する注入口4c，5c及び排出口4d，5dは、それぞれ1個又は複数を形成することができる。なお、金属板4，5の厚みは、薄くするほど全体の薄型化に有効であるが、強度、伸び、重量、弾性率、ハンドリング性などを考慮すると、50～500μmが好ましい。

【0029】

金属板4，5に流路溝9を形成する方法としては、プレス加工、切削などの機械的な方法やエッチングなどの化学的な方法が挙げられる。但し、前述の理由より、プレス加工による金属板の変形により流路溝9が形成されていることが好ましい。図1の金属板4の上面には、プレス加工による流路溝9の凸条9cが示されている。

【0030】

特に、プレス加工による流路溝9では、幅0.1～10mm、深さ0.1～10mmが好ましい。また、流路溝9の断面形状は、略台形、略半円形、V字形などが好ましい。

【0031】

本発明では、金属板4，5の周縁は、絶縁材料6を介在させつつカシメにより封止されている。本発明では、カシメを行う際、図2に示すように、金属板4，5の周縁によって固体高分子電解質1を挟持する構造が好ましく、絶縁材料6を介在させつつ固体高分子電解質1を挟持する構造がより好ましい。このような構造によると、電極板2，3の一方から他方へのガス等の流入を効果的に防止することができる。

【0032】

絶縁材料6としては、シート状の樹脂、ゴム、熱可塑性エラストマー、セラミックスなどが使用できるが、シール性を高める上で、樹脂、ゴム、熱可塑性エラストマーなどが好ましい。絶縁材料6は、金属板4，5の周縁に粘着テープを貼着したり、塗布したりして、予め金属板4，5に一体化しておくことも可能である。

【0033】

カシメ構造としては、シール性や製造の容易性、厚み等の観点から図2に示すものが好ましい。つまり、一方の金属板5の外縁部5aを他方の外縁部4aより大きくしておき、絶縁材料6を介在させつつ、一方の金属板5の外縁部5を他方の金属板4の外縁部4aを挟圧するように折り返したカシメ構造が好ましい。このカシメ構造では、プレス加工等によって、金属板4の外縁部4aに段差を設けておくのが好ましい。このようなカシメ構造自体は金属加工として公知であり、公知のカシメ装置によって、それを形成することができる。

【0034】

また、図3(a)に示すカシメ構造ものでもよく、このカシメ構造は、両方の金属板4，5の外縁部4a，5aを折り返したカシメ構造である。なお、この単位セルUCでは、各々の電極板2，3から拡散したガスが混合しないように、金属板4，5の各々と固体高分子電解質1との間に、シール部材Sを介在させている。

【0035】

更に、図3(b)に示すカシメ構造ものでもよく、このカシメ構造は、両方の金属板4，5の外縁部4a，5aを折り返さずに、別の金属板7によって、各々の金属板4，5を絶縁する絶縁材料6a，6bを介して、挟圧したカシメ構造である。なお、カシメ構造では、両者の金属板4，5をプレス加工せずに平板のまま使用することも可能である。

【0036】

本発明では、図2に示すような単位セルUCを1個又は複数個使用することができるが、固体高分子電解質1、一対の電極板2，3、及び一対の金属板4，5で単位セルUCを構成し、この単位セルUCを複数積層してあることが好ましい。本発明によると、ボルト

及びナットの締結部品で相互結合して、セル部品に一定の圧力を加えなくても、高出力の燃料電池を提供することができる。

【0037】

複数積層する場合、単位セルUCどうしの間に、ガス等の流路を形成できるスペーサを設けて積層することも可能であるが、図4に示すように、スペーサを介在させずに積層することが薄型化や設計の自由度の点から好ましい。

【0038】

また、金属板4, 5の流路溝9の凸条9cを等間隔で平行に形成しておき、各々の単位セルUCの凸条9cが相互に嵌まり合うようにすることができる。これによって、単位セルUCの積層時の厚みをより低減することができる。

【0039】

図4に示す実施形態では、単位セルUC（金属板4, 5）の一辺付近に水素ガス等の注入口4c及び排出口4dを設け、対向する一辺の裏側に空気等の注入口5c及び排出口5dを設けておき、これらが露出するように各々の単位セルUCをずらして積層している。この状態で図4(b)に示すように、主管11から分岐管12が分岐したチューブ10の分岐管12を注入口4cに接続することで、水素ガス等の注入を行うことができる。このようなチューブ10を注入口5c、排出口4d、排出口5dに接続することで、酸化ガスと還元ガスの注入・排出が可能となる。

【0040】

一方、金属板同士が接触することで、単位セルUCが直列に接続されることになり、両端の単位セルUCから、積層数に応じた電圧の電流を取り出すことができる。また、複数の単位セルUCごとスペーサを設けて（図示省略）、単位セルUCごとに電流を取り出すことも可能である。

【0041】

本発明の燃料電池は、薄型化が可能で小型軽量かつ自由な形状設計が可能なため、特に、携帯電話、ノートPC等のモバイル機器に好適に使用することができる。

【実施例】

【0042】

以下、本発明の構成と効果を具体的に示す実施例等について説明する。

【0043】

【実施例】

耐食性を有するSUS（50mm×26mm×0.08mm厚）に溝（幅0.8mm、深さ0.2mm、間隔1.6mm）を21個設ける。そして絶縁シート（50mm×26mm×2mm幅、厚み80μm）をSUSに張り合わせた。また、薄膜電極組立体（49.3mm×25.3mm）は、下記のようにして作製した。白金触媒は、米国エレクトロケム社製20%白金担持カーボン触媒（EC-20-PTC）を用いた。この白金触媒と、カーボンブラック（アクゾ社ケッテンブラックEC）、ポリフッ化ビニリデン（カイナー）を、それぞれ75重量%、15重量%、10重量%の割合で混合し、ジメチルホルムアミドを、2.5重量%のポリフッ化ビニリデン溶液となるような割合で、上記白金触媒、カーボンブラック、ポリフッ化ビニリデンの混合物中に加え、乳鉢中で溶解・混合して、触媒ペーストを作製した。カーボンペーパー（東レ製TGP-H-90、厚み370μm）を20mm×43mmに切断し、この上に、上記のようにして作製した触媒ペースト約20mgをスパチュラにて塗布し、80℃の熱風循環式乾燥機中で乾燥した。このようにして4mgの触媒組成物が担持されたカーボンペーパーを作製した。白金担持量は、0.6mg/cm²である。

【0044】

上記のようにして作製した白金触媒担持カーボンペーパーと、固体高分子電解質（陽イオン交換膜）としてナフィオンフィルム（デュポン社製ナフィオン112）（25.3mm×49.3mm、厚み50μm）を用い、その両面に、金型を用いて、135℃、2MPaの条件にて2分間ホットプレスした。こうして得られた薄膜電極組立体を上記のSU

S板2枚の中央で挟み込み、図2に示すようにカシメ合わせることで、外寸50mm×26mm×1.4mm厚という薄型小型のマイクロ燃料電池を得る事ができた。

【0045】

このマイクロ燃料電池の電池特性を評価した。燃料電池特性は、東陽テクニカ製燃料電池評価システムを用い、室温下、純水素ガス、純酸素ガスを用いて評価した。ガス流量は、0.2L/minとした。得られた最大出力密度は、電極面積当たり400mW/cm²であった(図5)。そして6個の燃料電池セルを積層することで直列接続となり、燃料電池として18Wの出力が得られた。本発明の特長は、厚さ1.4mmで薄くかつ単位電極面積当たり400mW/cm²と高出力が得られるところにある。

【図面の簡単な説明】

【0046】

【図1】本発明の燃料電池の単位セルの一例を示す組み立て斜視図

【図2】本発明の燃料電池の単位セルの一例を示す正面視断面図

【図3】本発明の燃料電池のカシメ構造の他の例を示す要部断面図

【図4】本発明の燃料電池の単位セルの積層状態の一例を示す図であり、(a)はチューブ取付前の斜視図、(b)はチューブ取付後の要部正面図

【図5】本発明の実施例で得られた燃料電池の電圧と出力の関係を示すグラフ

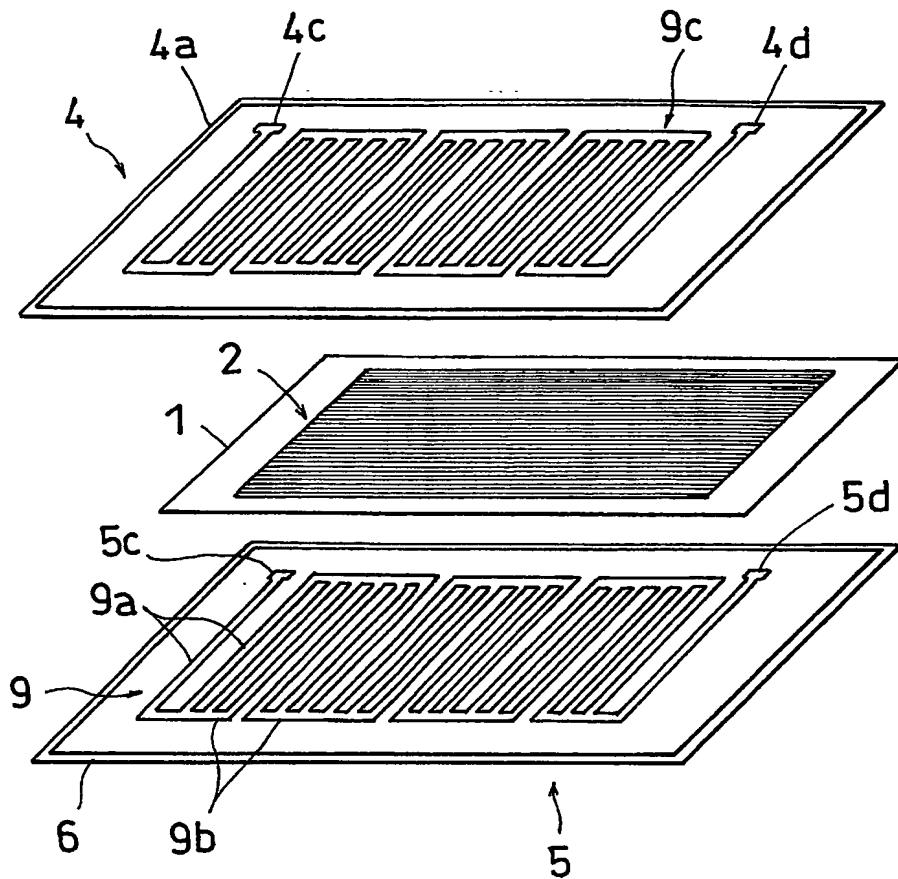
【図6】従来の燃料電池の一例を示す組み立て斜視図

【符号の説明】

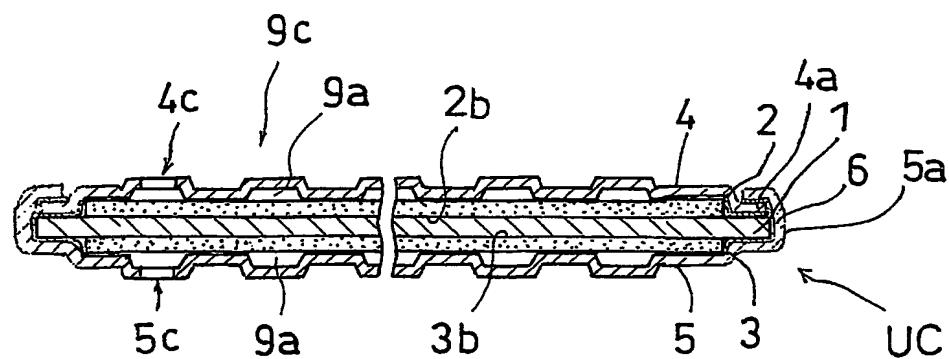
【0047】

1	固体高分子電解質
2, 3	電極板
4, 5	金属板
4 c, 5 c	注入口
4 d, 5 d	排出口
6	絶縁材料
9	流路溝
9 a	縦溝
9 b	横溝

【書類名】 図面
【図1】

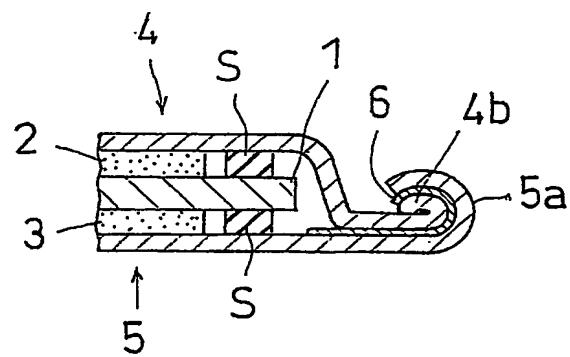


【図2】

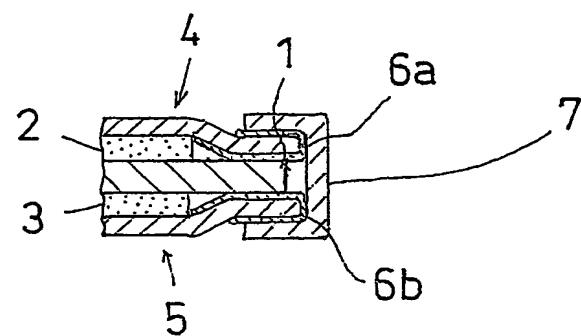


【図3】

(a)

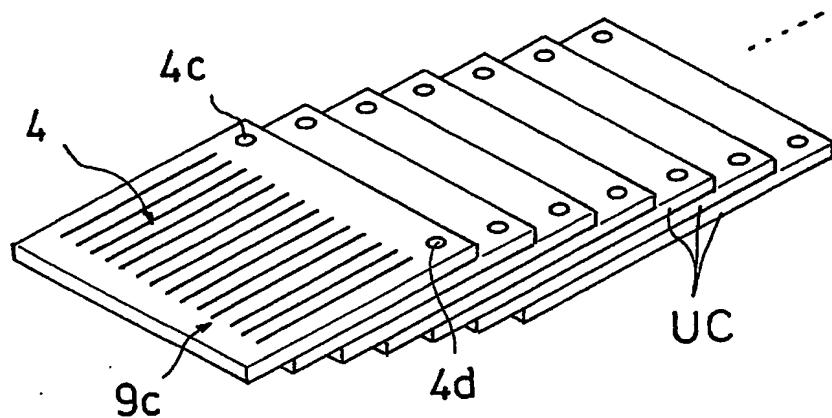


(b)

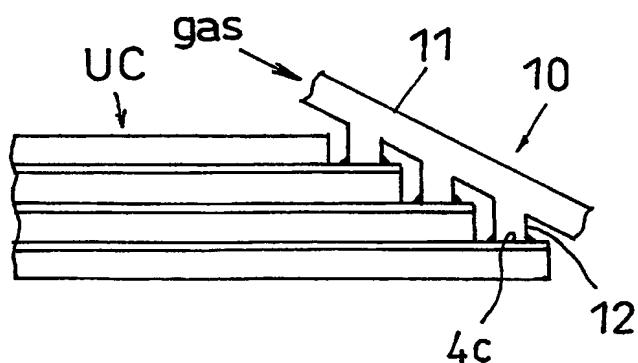


【図4】

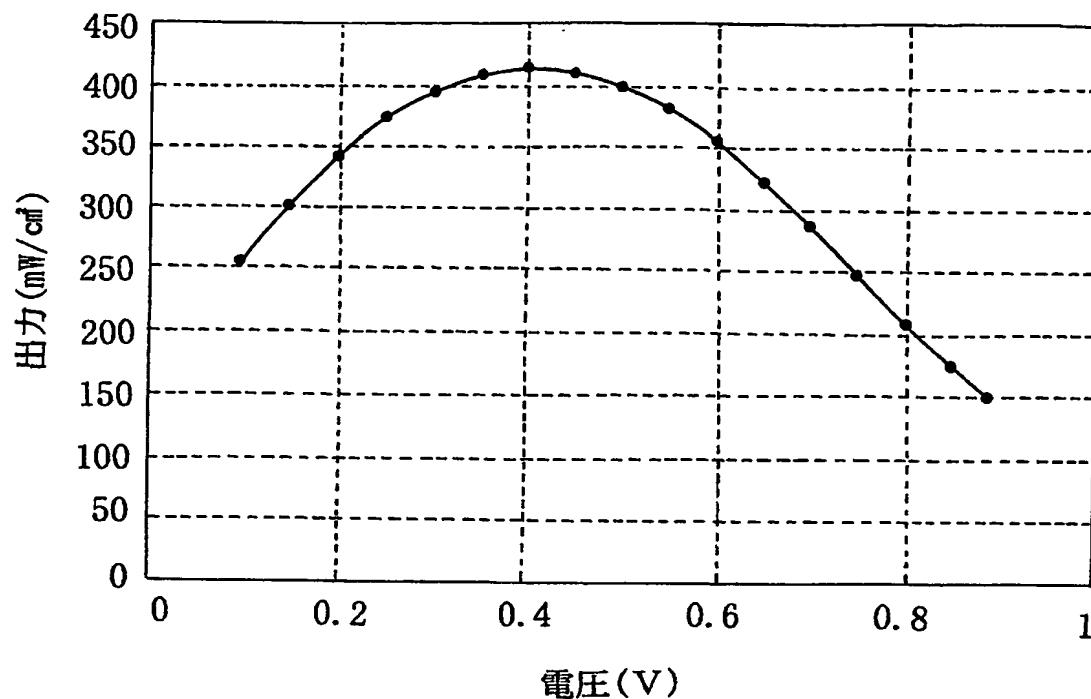
(a)



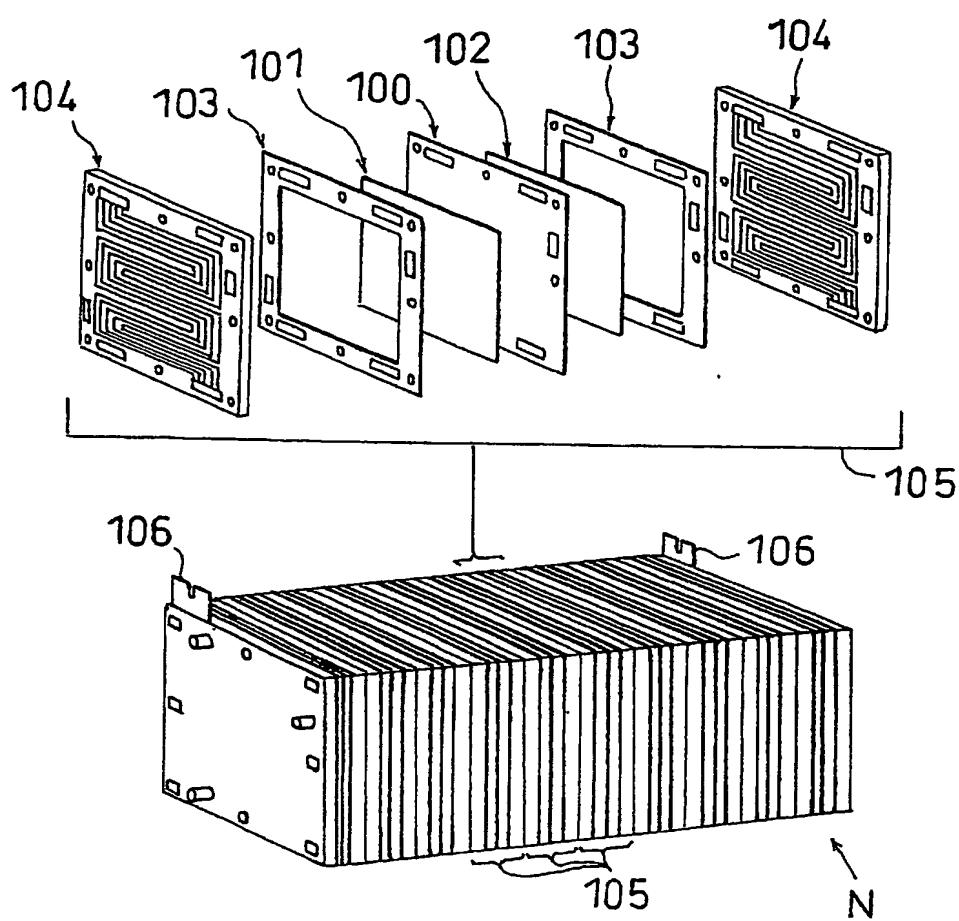
(b)



【図5】



【図6】



【書類名】要約書

【要約】

【課題】単位セルごとに確実に封止を行うことができ、これによって薄型化が可能となり、メンテナンスも容易になり、しかも小型軽量かつ自由な形状設計が可能な燃料電池を提供する。

【解決手段】板状の固体高分子電解質1と、その固体高分子電解質1の両側に配置された一対の電極板2，3とを備える燃料電池において、前記電極板2，3の両側に配置され、流路溝9とこれに連通する注入口4c，5c及び排出口が設けられた一対の金属板4，5を備え、その金属板4，5の周縁が絶縁材料6を介在させつつカシメにより封止されていることを特徴とする。

【選択図】図2

認定・付加情報

特許出願の番号	特願2003-389059
受付番号	50301909267
書類名	特許願
担当官	第五担当上席 0094
作成日	平成15年11月20日

<認定情報・付加情報>

【提出日】	平成15年11月19日
-------	-------------

特願 2003-389059

出願人履歴情報

識別番号

[000003964]

1. 変更年月日

[変更理由]

住 所

氏 名

1990年 8月31日

新規登録

大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号

日東電工株式会社

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record.**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS**
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- FADED TEXT OR DRAWING**
- BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- SKEWED/SLANTED IMAGES**
- COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- GRAY SCALE DOCUMENTS**
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.